

## 研究活動 ノ 構造物性

### VII . 物性理論グループ VII - 4 . ナ

雑誌名	年次研究報告
巻	2013
ページ	155-162
発行年	2014-10
URL	<a href="http://hdl.handle.net/2241/00124605">http://hdl.handle.net/2241/00124605</a>

## VII-4 ナノ構造物性

### 1. メンバー

教授            岡田 晋  
研究員        小鍋 哲、富田 陽子、猪谷 太輔  
学生           大学院生 3 名、学類生 3 名

### 2. 概要

ナノスケール構造を持つ物質においては、その物性は系のサイズ、表面(端)形状等に非常に大きく依存することが知られている。このことは、他方において、既存の物質においても、物質のサイズをナノメートルオーダーとし、その形状を制御することにより、新奇物性、新機能発現を誘起させることが可能であることを示唆している。実際、興味深い物性を示す種々のナノスケール炭素物質群の合成が近年盛んになされている。例えば、有限幅のグラファイト断片（グラファイトリボン）はその端形状に依存して、端を構成する原子にスピン分極が生じる事が知られている。さらに、このリボンを丸めた有限長さのナノチューブでは、そのチューブ直径に依存して、強磁性、反強磁性磁気秩序を示す事が我々の量子論に基づく全エネルギー計算から明らかになっている。また、チューブに5員環と8員環からなるトポロジカル欠陥を導入することにより、欠陥にそって分極電子が局在しチューブ軸にそって強磁性的秩序を発現する。

我々のグループでは、ナノサイズ炭素系（ナノチューブ、フラーレン、グラファイト）の電子物性を理論的に解析することによって、サイズ、形状が誘起する特異な電子物性発現の可能性を探索する事を目的としている。

### 3. 研究成果

#### 【1】電界下におけるグラファイト系材料の電子物性

電子デバイス中に組み込まれた種々のグラファイト系材料は、その機能制御において外部電界に晒されることが本質である。これまでに、ゲート電界に対応する、グラファイト系材料の原子ネットワークに対して鉛直方向に印加された電界下における物性の解明は多くなされてきている。ここでは、グラファイト系材料をチャネル材として用いた際に、ゲート電界と同様に重要になるソース・ドレイン電界に着目し、グラファイト系材料の横電界への応答性を調べた。考えた構造モデルは、有限長の CNT、任意の端形状を有するグラフェンリボンを対向電極でサンドイッチしたものを考え、これらグラファイト系材料に電界を印加し、静電ポテンシャル(電子の感じるオンサイトエネルギー)の空間変調を明らかにした。その結果、グラファイト系材料の端がごく一部でもジグザグ型の端形状を有すると、その端近傍において過剰電界遮蔽に伴うポテンシャルの振動が発現することを明らかにした(図1)。すなわち、近接の原子サイト間において印加電界に対し逆電界が存在している。このため、非アームチェの端形状を持つグラファイ

ト系材料においては、電極からキャリアがオーミックに注入されたとしても、端近傍のポテンシャル振動により多重散乱を受け、良伝導特性を示さない可能性があることを示し、鉛直電界に加えて平行電界も十分に考慮に入れたデバイス設計を行う必要がある

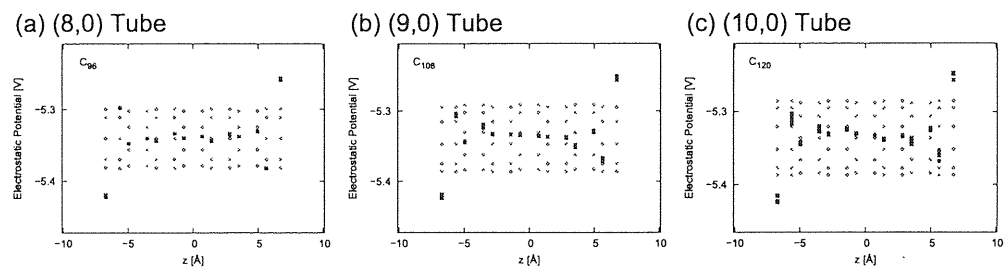


図 1 有限長ジグザグナノチューブの横電界下での静電ポテンシャル.

ることを示した。

## 【2】トポロジカルな欠陥を有するグラフェンの物性解明

グラフェンは本質的に、その6員環ネットワークに非6員環、すなわちトポロジカルな欠陥を含むことが知られている。これらのトポロジカルな欠陥はフェルミレベル近傍の電子物性を大きく変調させることを我々はこれまでに示してきた。本年度、我々は、sp<sup>2</sup>炭素原子が多様な多角形炭化水素分子を形成することに着目し、トポロジカル欠陥を主体とするsp<sup>2</sup>炭素シートの物質設計を行った。ここでは、4員環(シクロブタジエン)と8員環からなるネットワーク、5員環と12員環から構築される2次元シートの安定構造と電子物性を明らかにした。5員環ネットワークにおいては、その原子ネットワークに一切6員環を含まないにもかかわらず、フェルミレベル近傍において1対の線形分散バンドが発現することを示した。また

同時にフェルミレベルに平坦バンドが発現し、強磁性的な磁気秩序が発現することも示した(図2)。すなわち、ディラック電子系と強磁性的磁気秩序が共存する興味深い電子構造を有する系であり、この構造を用いた磁性と伝導特性を併せ持つ新奇なデバイスの材料となることを示した。

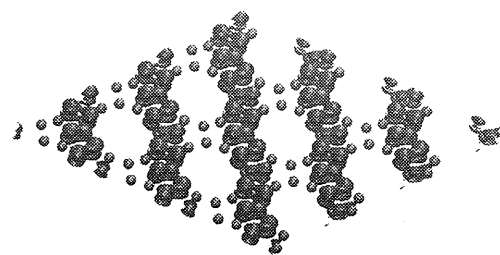


図 2 2次元5員環ネットワークのスピンドensity

## 【3】カーボンナノチューブにおける高効率光電変換

次世代太陽光発電機構の1つとして、多重励起子生成(MEG)型が提案されている。これは光エネルギーを熱散逸により失う前に、クーロン相互作用を介して、他の励起子を生成するために用いる。その結果、1つの光子から複数の励起子を生成することが可能となり、光電変換の高効率化が期待される。これまで我々は1次元物質であるカーボンナノチューブにおいてこの現象を調べ、非常に高効率に励起子生成が起きることを示してきた。しかし、これまでの研究では、実際に発電で重要になるキャリア(光電流)の生成効率に関しては明らかではなかった。そこで本研究では、ナノスケール物質であるカーボンナノチューブにおいて、様々な緩和プロセスを考慮した光電流生成シミュレーションを行うことにより、キャリア生成効率を調べた。その結果、緩和プロセスが存在していても、キャリア生成効率が150%を超えることがわかった。(図3)

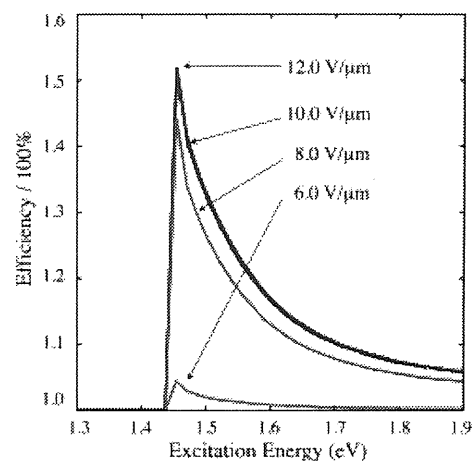


図3 カーボンナノチューブにおける光電流生成効率。

#### 【4】 グラフェン・ダイヤモンドハイブリッド構造における多重励起子生成

低次元材料の光学応答ではクーロン相互作用の増大に伴い、励起子などの多体効果が顕著になるだけでなく、励起子自身が他の励起子とクーロン相互作用し、様々な励起子多体効果を示すようになる。とりわけ、1つの光子から複数個の励起子を生成する多重励起子生成は、基礎物理のみならず高効率光電変換への応用の観点からも興味深い。これまで、計算モデルとして理想的な状況下における多重励起子生成を調べてきたが、応用を考える際には現実

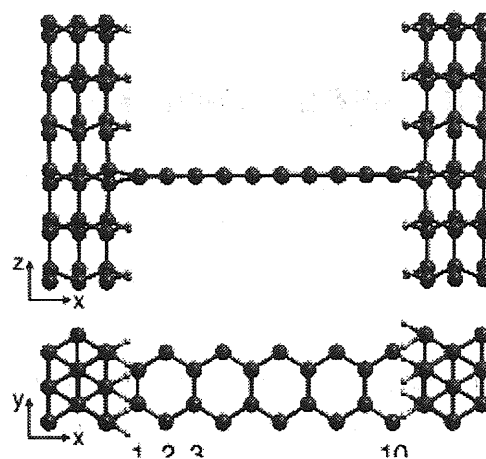


図4 多重励起子生成を示すグラフェン・ダイヤモンド構造。

的な構造での解析が望ましい。そこで本研究では、グラフェンナノリボンをダイヤモンドで挟んだ複合安定構造を考え(図 4)、その多重励起子生成を調べた。計算の結果、多重励起子生成効率は 180%にも達することがわかった。この結果は、グラフェン-ダイヤモンドハイブリッド構造のような複合構造においても、グラフェンリボンの高効率な多重励起子生成率が保たれることを示している。

#### 4. 学位論文

修士：

1. 丸山実那：新奇炭素結晶相の物質設計と物性解明(2014 年 3 月)
2. 山中綾香：電界下における有限長カーボンナノチューブの電子物性(2014 年 3 月)
3. 塩川太郎：多電子波束ダイナミクスの理論的研究(2014 年 3 月)
4. 加藤重徳：超格子 GeTe/Sb<sub>2</sub>Te<sub>3</sub>相変化メモリの動作メカニズムの検討(2014 年 3 月)
5. 長川健太：SiC の欠陥への理論的考察(2014 年 3 月)

博士：

1. 梁文榮：First-Principles Atomistic Study of the Physical Mechanisms in the Next Generation Memory Devices (次世代メモリデバイスにおける原子レベルの物理機構に関する第一原理計算の研究) (2014 年 3 月)
2. 花岡恭平：Theoretical elucidations on the activity modulation mechanism of vitamin D receptor and the DNA religation mechanism of DNA topoisomerase II (ビタミン D 受容体の活性制御機構と II 型 DNA トポイソメラーゼの DNA 再結合反応機構に対する計算科学的解明) (2014 年 3 月)

#### 5. 受賞、外部資金、知的財産権等

受賞(賞の名称、受賞者名、タイトル、年月日)

1. 山中 綾香、ワークショップ「機能性ナノ材料開発に役立つ先端シミュレーション」ポスター賞、2013 年 6 月。

外部資金(名称、氏名、代表・分担の別、採択年度、金額、課題名)

代表

1. 戦略的創造研究推進事業 CREST「次世代エレクトロニクスデバイスの創出に資する革新材料・プロセス研究」(科学技術振興機構)(2009 年度～2014 年度)  
「計算科学によるグラファイト系材料の基礎物性解明とそのデバイス応用における設計指針の開発」(総額:82,100 千円)
2. 科学研究費補助金 基盤研究(A)(文部科学省)(2013 年度～2016 年度)「ナノ

炭素物質と無機半導体からなる複合構造におけるナノ界面物性の解明」(総額：35,200 千円)

## 6. 研究業績

### (1) 研究論文

1. Satoru Konabe and Susumu Okada, “Enhanced Photocurrent in Single-Walled Carbon Nanotubes by Exciton Interactions” *Applied Physics Letters* Vol. 102, 113110 (2013). (DOI: 10.1063/1.4798274)
2. Haruna Nitta, Yutaka Matsuo, Eiichi Nakamura, and Susumu Okada, “Magnetic Properties of Deca-Methyl Fullerenes: Radical Spin Interaction on Chemically Functionalized Fullerenes” *Applied Physics Express* Vol. 6, 045102 (2013). (DOI: 10.7567/apex.6.045102)
3. Satoru Konabe, Nguyen Thanh Cuong, Minoru Otani, and Susumu Okada, “High-Efficient Photoelectric Conversion in Graphene-Diamond Hybrid Structures: First-principles and Model Calculations” *Applied Physics Express* Vol. 6, 045104 (2013). (DOI: 10.7567/APEX.6.045104)
4. Junki Sone and Susumu Okada, “Massless Electrons on Hexagonal Dangling Bond Network on Hydrogen Deposited Diamond (111) and Si(111) Surfaces” *Journal of the Physical Society of Japan* Vol. 82, 064706 (2013). (DOI: 10.7566/jpsj.82.064706)
5. Katsumasa Kamiya and Susumu Okada, “Energetics and Electronic Structures of Alkanes Adsorbed on Carbon Nanotubes” *Japanese Journal of Applied Physics* Vol. 52, 06GD10 (2013). (DOI: 10.7567/JJAP.52.04CN07)
6. Ayaka Yamanaka and Susumu Okada, “Electronic Properties of Capped Carbon Nanotubes under an Electric Field: Inhomogeneous Electric-Field Screening Induced by Bond Alternation” *Japanese Journal of Applied Physics* Vol. 52, 06GD04 (2013). (DOI: 10.7567/JJAP.52.06GD04)
7. Shota Kigure and Susumu Okada, “Energetics and Electronic Structures of C<sub>60</sub> Included in [n]Cyclacene Molecules” *Journal of the Physical Society of Japan* Vol. 82, 094717 (2013). (DOI: 10.7566/JPSJ.82.094717)

8. Mina Maruyama and Susumu Okada, “A Two-dimensional  $sp^2$  Carbon Network of Fused Pentagons: All Carbon Ferromagnetic Sheet” *Applied Physics Express* Vol. 6, 095101 (2013). (DOI: 10.7567/APEX.6.095101)
9. Mark A. Bissett, Satoru Konabe, Susumu Okada, Masaharu Tsuji and Hiroki Ago, “Tuning the Chemical Reactivity of Graphene by Mechanical Strain” *ACS Nano* Vol. 7, pp. 10335 -- 10343 (2013). (DOI: 10.1021/nn404746h)
10. Mina Maruyama and Susumu Okada, “Design of New Carbon Allotropes of Fused Small Fullerenes” *Physica Status Solidi (c)* Vol. 10, pp. 1620 -- 1623 (2013). (DOI: 10.1002/pssc.201300237)
11. Ayaka Yamanaka and Susumu Okada, “Electrostatic Potential of Hydrogenated Finite-length Carbon Nanotubes under an Electric Field” *Physica Status Solidi (c)* Vol. 10, pp. 1624 -- 1627 (2013). (DOI: 10.1002/pssc.201300234)
12. Tae-uk Park, Yoko Tomita, and Takashi Nakayama, “First-principles study of Pt-film stability on doped graphene sheets” *Surface Science* Vol. 621, pp. 7–15 (2014). (DOI: 10.1016/j.susc.2013.10.011)
13. Mina Maruyama, Kyoko Nakada, and Susumu Okada, “Energetics and electronic structures of polymerized cyclobutadiene” *Japanese Journal of Applied Physics* Vol. 53, 035103 (2014). (DOI: 10.7567/JJAP.53.035103)
14. Nguyen Thanh Cuong, Minoru Otani, and Susumu Okada, “Electrostatic modulation of electron-states in  $MoS_2$ : First-principles Calculations” *Journal of Physics: Condensed Matter* Vol. 26, 135001 (2014). (DOI: 10.1088/0953-8984/26/13/135001)

## (2) 招待講演

1. 小鍋哲、“ナノスケール物質における新奇光電・熱電変換の基礎物理”、仙台“プラズマフォーラム”、東北大学、2013 年 11 月 2 日.
2. 小鍋哲、“ナノカーボン物質における励起子多体物性”、ナノフォトニクスシンポジウム「ナノフォトニクスにおける複雑性・多様性と機能」、慶応大学、2013 年 7 月 18 日.

3. 岡田晋, “グラフェン系物質のデバイス応用にむけた展望と問題” 2013 年真空・表面科学合同講演会, 茨城県つくば市・つくば国際会議場, 2013 年 11 月 28 日.
4. 小鍋哲, “Multiple exciton generation in carbon nanotubes”, International Conference on Small Science (ICSS2013), Red rock casino resort and spa hotel (ラスベガス), 2013 年 12 月 16 日.

(3) 国際会議発表

1. Susumu Okada and Jun-ki Sone, “Massless Electrons on Hexagonal Dangling Bond Network on Hydrogen Deposited Diamond (111) and Si(111) Surfaces” ISANN 2013 International Symposium on Advanced Nanodevices and Nanotechnology, Poipu Beach, Kauai, USA, 2013 年 12 月 8 日
2. Mina Maruyama and Susumu Okada, “Design of Novel Two-dimensional Electron Systems” The 5th International Conference on Recent Progress in Graphene Research (RPGR2013), Tokyo Institute of Technology, Tokyo, 2013 年 9 月 12 日.
3. Satoru Konabe and Susumu Okada, “Enhanced Photocurrent in Single-walled Carbon Nanotubes by Exciton Interactions” MNC2013, 26th International Microprocesses and Nanotechnology Conference, Sapporo, 2013 年 11 月 7 日.
4. Ayaka Yamanaka and Susumu Okada, “Anomalous Electric-Field Screening at the Edge Atomic Sites of Finite-Length Zigzag Carbon Nanotubes” 14th International Conference on the Science and Application of Nanotubes (NT13), Aalto University (Espoo), 2013 年 6 月 26 日.
5. Satoru Konabe, Kazunari Matsuda, and Susumu Okada, “Suppression of Exciton-Electron Scattering in Doped Single-Walled Carbon Nanotubes” 14th International Conference on the Science and Application of Nanotubes (NT13), Aalto University (Espoo). 2013 年 6 月 27 日.
6. Nguyen Thanh Cuong, Minoru Otani, Susumu Okada, “Tailoring electronic structure of MoS<sub>2</sub> by electrostatic doping” 14th International Conference on the Science and Application of Nanotubes (NT13), Aalto University (Espoo), 2013 年 6 月 27 日.
7. Mina Maruyama and Susumu Okada, “Magnetic Two-Dimensional sp<sup>2</sup> Carbon Sheet of Fused Pentagons” 14th International Conference on the Science and Application of Nanotubes (NT13), Aalto University (Espoo), 2013 年 6 月 27 日.
8. Junki Sone and Susumu Okada, “Slow Dirac Electrons on Hexagonal Dangling Bond Networks on Hydrogen Deposited Diamond (111) and Si (111) Surfaces” 14th International Conference on the Science and Application of Nanotubes (NT13), Aalto University (Espoo), 2013 年 6 月 27 日.



9. Mina Maruyama and Susumu Okada, "Design of New Carbon Allotropes of Fused Small Fullerenes" The 40th International Symposium on Compound Semiconductors, Kobe Convention Center, Kobe, 2013 年 5 月 23 日.
10. Ayaka Yamanaka and Susumu Okada, "Electrostatic Potential of Hydrogenated Finite-length Carbon Nanotubes under an Electric Field" The 40th International Symposium on Compound Semiconductors, Kobe Convention Center, Kobe, 2013 年 5 月 22 日.
11. Mina Maruyama and Susumu Okada, "Two-dimensional sp<sup>2</sup> Carbon Network of Fused Pentagons: All Carbon Ferromagnetic sheet" MNC2013, 26th International Microprocesses and Nanotechnology Conference, Sapporo, 2013 年 11 月 7 日.
12. Ayaka Yamanaka and Susumu Okada, "Structural Dependence of Electronic Properties of Graphene Nanoribbons on an Electric Field" MNC2013, 26th International Microprocesses and Nanotechnology Conference, Sapporo, 2013 年 11 月 7 日.
13. Shota Kigure and Susumu Okada, "Energetics and Electronic Structures of C<sub>60</sub> included within [n]Cyclacene Molecules" MNC2013, 26th International Microprocesses and Nanotechnology Conference, Sapporo, 2013 年 11 月 7 日.
14. Daisuke Inotani, Yoji Ohashi, and Susumu Okada, "Collective Properties of Superconducting Graphene" MNC2013, 26th International Microprocesses and Nanotechnology Conference, Sapporo, 2013 年 11 月 7 日.
15. Shota Kigure and Susumu Okada, "Dynamical Properties and Electronic Structure of C<sub>60</sub> included in [n]Cyclacene" ISANN 2013 International Symposium on Advanced Nanodevices and Nanotechnology, Poipu Beach, Kauai, 2013 年 12 月 11 日.
16. Mina Maruyama and Susumu Okada, "A Two-dimensional Carbon Network of Fused Pentagons: All Carbon Magnetic Sheet" ISANN 2013 International Symposium on Advanced Nanodevices and Nanotechnology, Poipu Beach, Kauai, 2013 年 12 月 11 日.
17. Ayaka Yamanaka and Susumu Okada, "Electronic Properties of Graphene under an Electric Field" ISANN 2013 International Symposium on Advanced Nanodevices and Nanotechnology, 2013 Poipu Beach, Kauai, 2013 年 12 月 11 日.